

⑫ 公開特許公報(A) 平3-91490

⑤ Int. Cl.⁵C 12 P 19/18
A 61 K 35/78
C 07 G 3/00

識別記号

B

庁内整理番号

8214-4B
8412-4C
8318-4H

④ 公開 平成3年(1991)4月17日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全5頁)

⑥ 発明の名称 イチョウ葉有効成分の抽出方法およびイチョウ葉有効成分の配糖体
エキスの製造方法

⑦ 特 願 平1-228638

⑧ 出 願 平1(1989)9月4日

⑨ 発 明 者 高 根 芳 春 千葉県八千代市八千代台東3-14-12

⑩ 出 願 人 高 根 芳 春 千葉県八千代市八千代台東3-14-12

⑪ 代 理 人 弁理士 鈴木 俊一郎

日 月 年

1. 発明の名称

イチョウ葉有効成分の抽出方法およびイ
チョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法

2. 特許請求の範囲

1) イチョウ葉から有効成分を、水または水-エタノール混液で加熱抽出した後、抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼを加えて、イチョウ葉に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に対する溶解性の高い配糖体に糖転移して抽出液中に溶出させることを特徴とするイチョウ葉有効成分の抽出方法。

2) イチョウ葉抽出物の乾燥物を水または水-エタノール混液からなる抽出液に入れた後、該抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼとを

加えて、イチョウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に対する溶解性の高い配糖体に糖転移させることを特徴とするイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法。

3. 発明の詳細な説明

発明の技術分野

本発明は、イチョウ葉有効成分の抽出方法およびイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法に関し、さらに詳しくは、イチョウ葉から水溶性有効成分と水に難溶ないし不溶の有効成分とを同時に抽出して有効成分の抽出効率を向上させるイチョウ葉有効成分の抽出方法、およびイチョウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分から、製剤化が容易で、生体内での吸収効率のよい易吸収性配糖体エキスを製造するイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法に関する。

発明の技術的背景

イチョウは広く日本国内に存在しているが、イチョウの青葉(以下イチョウ葉と略記することが

ある)には、フラボノイド類、テルペン類、ポリフェノール類、ステロール類、脂肪酸類などの有効成分が、遊離の状態または配糖体等として含まれている。このような有効成分を含むイチョウ葉から水で抽出される有効成分は、配糖体を中心とする水溶性有効成分であって、イチョウ葉に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分は水で抽出することはできない。また、イチョウ葉から有機溶媒で抽出される有効成分は、水に難溶ないし不溶の有効成分であって、イチョウ葉に含まれている水溶性有効成分は有機溶媒で抽出することはできない。したがって、従来は、イチョウ葉に含まれている水溶性有効成分と水に難溶ないし不溶の有効成分とを同時に抽出することができないため、有効成分の抽出効率が低いという問題点があった。

また、一般に水に難溶ないし不溶の有効成分は、生体内での吸収効率が悪く、生体内での利用率が非常に低いという問題点があった。

発明の目的

また本発明に係るイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法は、イチョウ葉抽出物の乾燥物を水または水-エタノール混液からなる抽出液中に入れた後、該抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼを加えて、イチョウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に対する溶解性の高い配糖体に糖転移させることを特徴としている。

発明の具体的説明

以下、本発明に係るイチョウ葉有効成分の抽出方法およびイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法について具体的に説明する。

まず本発明に係るイチョウ葉有効成分の抽出方法について説明する。

本発明に係るイチョウ葉有効成分の抽出方法では、まずイチョウ葉から水溶性有効成分を水または水-エタノール混液で加熱抽出する。

本発明で用いられるイチョウ葉としては、予め

本発明は、上記のような従来技術に伴う問題点を解決しようとするものであって、イチョウ葉に含まれている水溶性有効成分と水に難溶ないし不溶の有効成分とを同時に抽出して有効成分の抽出効率を向上させるイチョウ葉有効成分の抽出方法、およびイチョウ葉に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分から、製剤化が容易で、生体内での吸収効率のよい易吸収性配糖体エキスを製造するイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法を提供することを目的としている。

発明の概要

本発明に係るイチョウ葉有効成分の抽出方法は、イチョウ葉から有効成分を、水または水-エタノール混液で加熱抽出した後、抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼを加えて、イチョウ葉に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に対する溶解性の高い配糖体に糖転移して抽出液中に溶出させることを特徴としている。

イチョウの青葉を乾燥して粗砕したイチョウ葉が好ましい。

本発明では、抽出液として水または水-エタノール混液を用いる。本発明で用いられる水-エタノール混液としては、エタノール含量が80重量%以下、好ましくは10~60容量%の範囲内である。

上記の加熱抽出は、通常、加熱還流することにより行なわれる。

上記の加熱抽出により抽出されるイチョウ葉の有効成分としては、フラボノイド、ポリフェノール、脂肪酸類、ラクトン類、テルペン類およびこれらの配糖体などが挙げられる。

次に、上記の抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼを加えて、イチョウ葉およびイチョウ葉抽出液に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に可溶な配糖体に糖転移して抽出液中に溶出させる。

本発明で用いられる澱粉部分加水分解物としては、具体的には、デキストリン、可溶性澱粉、オリゴ糖などが挙げられ、中でも、加水分解度(DE)の低いデキストリンが好ましい。本発明では、澱粉部分加水分解物は、通常、イチヨウ葉100重量部に対して1~100重量部、好ましくは10~30重量部の量で用いられる。

上記のグリコシダーゼとしては、一般に市販されているものが用いられる。また、上記のトランスグリコシダーゼとしては、具体的には、シクロデキストリングルカノトランスフェラーゼ(1,6,2,4,1,13)、 α -グリコシダーゼ(1,6,3,2,1,20)、アミロシュクラゼ(1,6,2,4,1,4)などの、フラボノイド等の有効成分を加水分解せずに配糖体を生成するものであれば自由に用いることができる。

上記の糖転移は、グルコース基転移酵素が失活しない温度範囲内の温度、好ましくは30~60℃に抽出液を加熱して行なう。

上記のように、イチヨウ葉に含まれている水に

難溶ないし不溶の有効成分を糖転移することによってイチヨウ葉およびイチヨウ葉抽出液において水に対する溶解性の高い配糖体が生成され、この配糖体が抽出液中に溶出する。

水に可溶性配糖体に糖転移する水に難溶ないし不溶の有効成分としては、フラボノイド類、ピッラボノイド類、テルペン類、ポリフェノール類およびこれらの配糖体などが挙げられる。

本発明によれば、イチヨウ葉から水可溶性有効成分だけでなく、水に難溶ないし不溶の有効成分も水に可溶性配糖体として同時に抽出できるので、イチヨウ葉に含まれている有効成分の抽出効率を向上させることができる。また本発明では、抽出液として水または水-エタノール混液を用いるため、抽出液が配糖体に残存しても人体に害を及ぼすおそれはない。

次に、本発明に係るイチヨウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法について説明する。

本発明に係るイチヨウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法では、その原料として、水、水-エ

タノール混液あるいは有機溶媒を用いて加熱抽出して得られたイチヨウ葉抽出物の乾燥物を用いるが、得られる配糖体に抽出液が残存しても人体に害を及ぼすおそれのない抽出液、たとえば水または水-エタノール混液を抽出液として用いることが好ましい。イチヨウ葉から有効成分を水、水-エタノール混液、有機溶媒で抽出する工程については、本発明に係るイチヨウ葉有効成分の抽出方法で前述した工程を採用することができる。

イチヨウ葉抽出物の乾燥物には、水に難溶ないし不溶の有効成分が含まれている。本発明においては、このようなイチヨウ葉抽出物の乾燥物を水または水-エタノール混液からなる抽出液の中に入れた後、この抽出液に、澱粉部分加水分解物と、澱粉部分加水分解物のグルコース基を転移させる作用を有するグリコシダーゼまたはトランスグリコシダーゼを加えて、イチヨウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を水に対する溶解性の高い配糖体に糖転移させる。

上記の水に難溶ないし不溶の有効成分を糖転移

して配糖体として抽出液中に溶出させる工程については、本発明に係るイチヨウ葉有効成分の抽出方法で前述した工程と同様である。なお本発明では、澱粉部分加水分解物は、通常、イチヨウ葉抽出物の乾燥物(イチヨウ葉エキス)1重量部に対して1~100重量部、好ましくは10~30重量部の量で用いられる。

上記のようにしてイチヨウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分を糖転移して抽出液中に溶出した配糖体を、従来公知の方法で分離精製および濃縮を行えばこの配糖体のエキスを得ることができる。

本発明によれば、イチヨウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分から、製剤化が容易で、生体内での吸収効率のよい易吸収性配糖体エキスを得ることができる。

発明の効果

本発明に係るイチヨウ葉有効成分の抽出方法によれば、イチヨウ葉に含まれている水可溶性有効成分と水に難溶ないし不溶の有効成分とを同時に

抽出することができるので、有効成分の抽出効率を向上させることができ、しかも、水に難溶ないし不溶の有効成分を生体内での吸収効率のよい易吸収性配糖体として抽出することができる。また、抽出液として水または水-エタノール混液を用いるため、抽出液が配糖体に残存したとしても人体に対して無害である。

本発明に係るイチョウ葉有効成分の配糖体エキスの製造方法によれば、イチョウ葉抽出物の乾燥物に含まれている水に難溶ないし不溶の有効成分から、生体内での吸収効率のよい易吸収性配糖体エキスが得られる。しかも、この易吸収性配糖体エキスは、水に対する溶解性が高く製剤化が容易であるため、高濃度の液剤たとえばシロップ剤、ドリンク剤、ローション、クリームを製造することができる。また、この易吸収性配糖体エキスは、その抗酸化性を利用する目的で多くの食品に任意に添加することもできる。

また、抽出液として水または水-エタノール混液を用いるため、抽出液が配糖体に残存したとし

ても人体に対して無害である。

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

実施例 1

乾燥粗砕したイチョウの青葉 1 kg を抽出槽に仕込んだ後、この抽出槽に含水量 50% の水-エタノール混液 5 l を加えて加熱還流しながら、有効成分を 2 時間かけて抽出した。

次いで、この抽出液を冷却しながら水 5 l と、デキストリン 200 g と、グルコース基転移作用を有するトランスグルコシダーゼを含有する α -アミラーゼ 10 mg とを抽出液に加えて pH 6.0 に調整し、50℃で 30 時間糖転移反応を行なった。

次いで、この抽出液を 95℃に加熱して上記酵素を失活させた後不純物を濾別し、濾液をダイヤイオン RP-20 [三菱化成工業調製] 2000 ml を充填したカラムにゆっくり滴下し、滴下終了後含水量 50% の水-エタノール混液 1000 ml をカラムに注いだ。

このカラムから流出した流出液を減圧濃縮し、さらに減圧下 40℃で 6 時間乾燥してイチョウ葉有効成分のエキス末 28 g を得た。

得られたエキス末を以下の方法で加水分解して分光光度計でフラボノイドの定量を行なった。

得られたエキス末 20.0 mg を 10 ml 容量の三角マイヤー中に入れた後、エタノール 1 ml および塩酸 2 ml を加えてマグネチックスターラーでエキスを溶解し、さらにマグネシウム末 0.3 g を加えて 30 分間反応させた。

次いで、この反応液を含水量 50 重量% の水-エタノール混液で 100 ml 容量のメスフラスコに洗い移して正確に 100 ml とし、試料溶液とした。

また標準品としてルチン 2.0 mg を用いて、上記の試料溶液の調製と同様にして標準液を得た。

試料溶液および標準液を、分光光度計 [日立ダブルビーム分光光度計 U-1000 型] にて含水量 50 重量% 水-エタノール混液と対照して、波長 365 nm における吸光度を求め、次式によって総フラボノイド含量を求めた。

$$\text{総フラボノイド含量} [\%] = \frac{\text{試料溶液の吸光度}}{\text{標準液の吸光度}} \times \frac{\text{標準品の採取量}}{\text{試料の採取量}} \times 100$$

上記試料の総フラボノイド含量は上記式より 13.6% であり、総フラボノイド抽出量は 3.8 g (28 g × 1.36) であった。

さらに、得られたエキス末について、テルペンラクトン類に属するギンゴライド (Ginkgolide) を薄層クロマトグラフィー (TLC) で分析した。

得られたエキス末 5.0 mg を 10 ml 容量の三角マイヤー中に入れた後、エタノール 1 ml および塩酸 2 ml を加えてマグネチックスターラーでエキスを溶解し、さらにマグネシウム末 0.3 g を加えて 30 分間反応させた。

次いで、この反応液に含水量 50 容量% の水-アセトン混液 1 ml を加えて攪拌し、この反応液の所定量をシリカゲル (キーゼルゲル 60 100) プ

プレート上にスポットしてトルエン／アセトン比が7／3である展開溶媒で約10cm展開した。展開後、プレートに微量の水をスプレーして170℃で30分間乾燥した後、紫外線波長254nmの紫外線ランプで観察したところ、Rf値0.22、0.19および0.10で淡青色の蛍光を強く発した。

比較例1

実施例1において、イチョウ葉に含まれている水溶性有効成分抽出後の糖転移反応を行なわなかった以外は、実施例1と同様にして、イチョウ葉有効成分のエキスを12gを得た。

得られたエキスを20.0mgについて、フラボノイドの定量を実施例1と同様にして行なった。

この試料の総フラボノイド含量は、18.2%であり、総フラボノイド抽出量は2.2g(12g×0.182)であった。

さらに、得られたエキスを5.0mgについて、ギンゴライド(Ginkgolide)の分析を実施例1と同様にして行なったところ、Rf値0.19で弱

い蛍光を認めただけであった。

上記の実施例1および比較例1より、実施例1で抽出されたエキスには、比較例1で抽出されたエキスと比較してより多量のギンゴライド(Ginkgolide)が含まれていることが理解させる。

なお、上記の薄層クロマトグラフィーによるRf値0.22、0.19および0.10における物質が、それぞれギンゴライドA、ギンゴライドB、ギンゴライドCであることを文献で確認した。

実施例2

市販のイチョウ葉抽出エキス粉末〔商品名「イチョウ葉エキス-24」、日本グリーンウエーブ製〕10.0gとデキストリン100gを蒸留水500mlに分散、溶解させて、1/10N-HClでこの溶液をpH6に調整した後、トランスグルコシラーゼを含有するα-アミラーゼ10mgを加えて60℃で20時間反応させた。

次いで、この反応液を95℃に加熱して酵素を失活させて濾過した。

このようにして得られた濾液を、ダイセイオンHP-21〔三菱化成工業製〕500mlを充填したカラムにゆっくり滴下し、滴下終了後蒸留水2000mlをカラムに注ぎ、さらに、このカラムに含水量50%の水-エタノール混液2000mlを注いだ。

このカラムから流出した流出液を減圧濃縮し、さらに減圧下40℃で6時間乾燥して糖転移したイチョウ葉抽出エキス粉末11.8gを得た。

〔シロップの製造〕

得られたイチョウ葉抽出エキス粉末11.8gを水50mlに溶解した。溶解の際、微かに茶白色の濁りを生じたが、不溶解物は全くなかった。次いで、この水溶液にソルビトール5gを添加したところ、淡褐色の透明なシロップが得られた。

一方、糖転移が行なわれていない市販のイチョウ葉抽出エキス粉末〔商品名「イチョウ葉エキス-24」、日本グリーンウエーブ製〕10.0gを水50mlに溶解したところ、2.6gの不溶解物が生じた。また、この水溶液にさらにソルビ

トール5gを添加したが、1.7gの不溶解物が残り、結局、シロップを製造することはできなかった。

代理人 弁理士 鈴木 俊一郎